

Institut für Reaktorentwicklung  
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH  
des Landes Nordrhein-Westfalen - e.V.

**Wiedereinspeisung erbrüteten Brennstoffs bei  
Thoriumreaktoren**

von

W. P. Barthold

**Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr.449**

Institut für Reaktorentwicklung Jül – 449 – RG

Dok.: Thorium Breeder Reactors - Refueling

DK: 621.039.574.3 : 546.841

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich  
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

# Wiedereinspeisung erbrüteten Brennstoffs bei Thoriumreaktoren

**Von W. P. Barthold, Jülich**

## 1. Einleitung

Die Begrenztheit der billigen Uranreserven führte zu der Forderung nach Brutreaktoren. Hier bieten sich zwei Möglichkeiten an, nämlich

- der U-238-Pu-239-Brutzyklus,
- der Th-232-U-233-Brutzyklus.

Thoriumreaktoren sind bei diesen Überlegungen in mehrfacher Hinsicht von Bedeutung:

- a) das in der Natur vorkommende U-235 wird in Thoriumreaktoren unter Energieerzeugung in U-233 „konvertiert“.
- b) U-233 hat über den gesamten Energiebereich einen höheren  $\eta$ -Wert als U-235. Bis zu 40 keV ist das  $\eta$  von U-233 auch größer als das  $\eta$  von Pu-239 (Abb. 1) [1].

Wegen des hohen  $\eta$ -Wertes von U-233 ist es möglich, Thoriumbrutreaktoren sowohl als thermische, epithermische als auch als schnelle Brüter zu bauen.

Ein weiterer Vorteil von U-233-Th-Systemen liegt in der inhärenten Sicherheit dieser Systeme: Temperaturkoeffizienten und Leistungskoeffizienten sind negativ. Das ist insbesondere deshalb wichtig, da der Anteil verzögerter Neutronen nur etwa 0,0026 beträgt (in Plutoniumsystemen sind es etwa 0,0021).

Die geforderte Schonung der billigen Uranreserven ist notwendig, aber nicht hinreichend. Die Notwendigkeit der Wiedereinspeisung erbrüteten Brennstoffs in Leistungsreaktoren, mit der gerade Thoriumreaktoren von Anfang an konfrontiert waren, stellt eine Reihe von Forderungen auf, um bei Leistungsreaktoren künftiger Generation *wirtschaftlich* Strom erzeugen zu können:

1. Herstellung und Refabrikation<sup>1)</sup> von Brennstoff sowie dessen Transport zu niedrigen Kosten.
2. Schnelle und billige Wiederaufarbeitung.

## 2. Refabrikation von Brennstoff

Die Kosten für die Refabrikation von Brennelementen werden durch folgende Faktoren beeinflusst:

**Anschrift des Verfassers:**

Dr. W. Barthold, Institut für Reaktorentwicklung, Kernforschungsanlage Jülich.

<sup>1)</sup> Unter Refabrikation soll die Verarbeitung des wiedergewonnenen Brennstoffes in Brennelemente verstanden werden.

Die Wiedereinspeisung erbrüteten Brennstoffs in Leistungsreaktoren wirft eine Reihe neuer Probleme auf. Am Beispiel von Thoriumreaktoren wird gezeigt, daß die Wirtschaftlichkeit dieser Systeme in sehr hohem Maße von billiger und schneller Wiederaufarbeitung und Refabrikation abhängt. Hohe Brutraten und spezifische Leistungen können nur dann sinnvoll ausgenutzt werden, wenn der erbrütete Brennstoff schnell und billig zurückgewonnen und verarbeitet werden kann. Selbst wenn von einem Reaktortyp 15 000 MW<sub>el</sub> installiert sind, wie dies im ganzen Euratom-Bereich erst für 1980 erwartet wird, machen die Refabrikations- und Wiederaufarbeitungskosten 12 bis 22% der Stromerzeugungskosten aus.

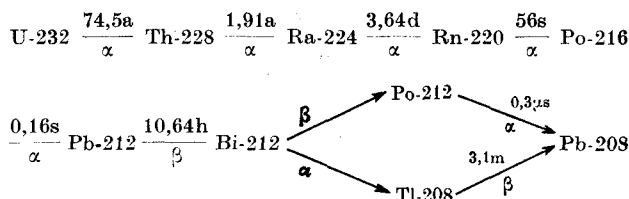
- a) Brennelementtyp,
- b) Herstellungsprozeß für das Brennelement,
- c) Isotopenzusammensetzung,
- d) Anlagengröße.

Wenn bei der Rückgewinnung des Brennstoffs das Brennelement zerstört werden muß, muß es sehr einfach aufgebaut sein. Komplizierte Elemente kann man verwenden, wenn das Brennelement nicht zerstört werden muß. Das Brennelement muß so entwickelt sein, daß man fernbediente Inspektionen durchführen kann. Ebenso muß gewährleistet sein, daß gewisse Toleranzen eingehalten werden können.

Änderungen der Dichte, der Länge und des Durchmessers des Brennstoffes beeinflussen unterschiedlich die Herstellungskosten [2] (Abb 2). Die Brennstofflänge ändert nur schwach die Herstellungskosten. Noch weniger beeinflusst die Brennstoffdichte die Herstellungskosten. Sehr stark steigen dagegen die Kosten an, wenn der Brennelementdurchmesser verkleinert wird.

Der Herstellungsprozeß muß so beschaffen sein, daß er sich in einer großen Refabrikationsanlage verwenden läßt. Umfangreiche Erfahrungen liegen auf diesem Gebiete nicht vor.

Für die Refabrikation der Brennelemente sind *Abschirmungen* notwendig, die in sehr hohem Maße die Kosten bestimmen. Für die Auslegung der Abschirmung ist der Gehalt an U-232 bestimmend. An den Zerfall von U-232 schließt sich eine Kette von  $\alpha$ -aktiven Strahlern an, die auch gleichzeitig eine hohe  $\gamma$ -Aktivität zeigen:



Der Hauptanteil von U-232 in thermischen Reaktoren wird durch einen (n, 2n)-Prozeß im Thorium ausgelöst. In Abb. 3 ist die Bildung von U-232 schematisch dargestellt. Als Folge des (n, 2n)-Prozesses bildet sich Th-231, das mit einer Halbwertszeit von 24,6

Stunden in Pa-231 zerfällt. Nach Einfang eines Neutrons bildet sich aus Pa-231 das Pa-232, das innerhalb von 1,32 Stunden in U-232 zerfällt, das nun seinerseits durch einen  $\alpha$ -Zerfall mit einer Halbwertszeit von 74 Jahren in Th-228 zerfällt.

In epithermischen und schnellen Systemen bildet sich der größte Teil des U-232 über einen  $(n, 2n)$ -Prozeß von U-233.

In Tabelle 1 sind die notwendigen Abschirmungen zur Herstellung von Brennelementen für den gasgekühlten Hochtemperaturreaktor (HTGR) und den Spectral Shift Control Reactor (SSCR) aufgeführt [2].

Es wurde angenommen:

- Die Zeit zwischen Lösungsmittelextraktion und Entnahme des Materials aus der Anlage zur Brennelementherstellung ist 5 Tage.
- Die Hauptreinigung der Anlage und der Zellen wird nach 5 Betriebstagen ausgeführt.
- Keine größere Materialmenge liegt dichter als 30 cm an der Wand.
- Die in der Anlage verbleibende Materialmenge (an den Wänden, in Spalten etc.) während der Aufarbeitung ist 3 kg.

Tabelle 1: Abschirmungen in Refabrikationsanlagen für U-233-Kernbrennstoffe

U-232 (ppm)	SSCR-Brennstoff*)			HTGR-Brennstoff- (U-Th) $C_2$ -Teilchen			HTGR-Brennstoff- $UC_2 + ThC_2$ -Teilchen		
	Anlagenkapazität in kg Schwermetall per Betriebstag								
	230	930	3700	230	930	3700	230	930	3700
Teilweise fernbediente Fabrikation (Dicke des Stahls in cm)									
1	2,03	3,0	3,6	3,0	4,8	5,1	7,1	7,1	8,1
2	4,31	5,3	5,8	5,1	6,9	7,4			
5	7,11	8,4	8,9	7,9					
Fernbediente Fabrikation (Dicke des Betons in cm)									
2							31,2	31,2	34,3
5					32,5	35,3	40,4	40,4	43,7
10	30,98	35,1	37,6	33,5	39,6	43,2	47,5	47,5	50,8
20	38,1	42,4	45,2	40,6	47,0	50,8	54,4	54,4	57,9
50	48,0	52,3	55,4	49,8	56,4	61,2	63,8	63,8	67,3
100	55,1	59,7	63,0	59,9	63,5	69,1	70,9	70,9	74,4
500	72,1	77,0	80,8	73,2	80,3	87,1	87,1	87,1	90,9
1000	79,2	86,1	88,4	80,3	87,4	95,0	94,0	94,0	98,0
U-Th	91,4	97,8	101,6	91,4	99,1	108,0	105,4	105,4	109,2

\*) SSCR

Tabelle 2: Brennstoffkreislaufkostenanteil der Refabrikation

	PWR	SSCR	HWR	HTGR	SBR
Abbrand (MWd/kg) . . . .	21	25,4	29,4	52,3	12
Kosten (mills/kWh <sub>el</sub> ) . . . .	0,34	0,25	0,22	0,26	0,61

Man sieht, daß mit wachsendem U-232-Gehalt die Abschirmungen stärker werden müssen. Mit (U-Th)-C $_2$ -Teilchen ist gemeint, daß jedes Teilchen eine Mischung von U-233 und Th enthält. Wegen der Verdünnung durch Thorium sind hier geringere Abschirmungen als im Falle einzelner Karbidteilchen notwendig. Für direkte Wiedereinspeisung (in der Tabelle als U-Th abgekürzt) ist die stärkste Abschirmung notwendig.

Wichtig ist auch die Erkenntnis, daß die Abschirmungen nur sehr wenig von der Anlagekapazität abhängen. Erhöht man den Tagesdurchsatz von 230 kg auf 3700 kg, so erhöhen sich die Abschirmungserfordernisse lediglich von 80,3 cm auf 95 cm bei 1000 ppm U-232 und einzelnen Karbidteilchen (UC $_2$  + ThC $_2$ ). Hier wird bereits deutlich, daß man zweckmäßigerweise die Refabrikationsanlagen für großen Tagesdurchsatz bauen muß, um niedrige Kosten zu erhalten. Unter Zugrundelegung einer Zinsbelastung von 22% für eine Einzweckanlage (die Anlage stellt nur einen Brennelementtyp her) sowie der Voraussetzung, daß diese Anlage insgesamt 15 000 MW<sub>el</sub> versorgen soll, ergeben sich die in Tab. 2 angeführten Brennstoffkreislaufkostenanteile, die aus der Refabrikation resultieren [3].

Für den Transport zur Refabrikationsanlage und zur Wiederaufarbeitungsanlage ergeben sich nochmals Kosten,

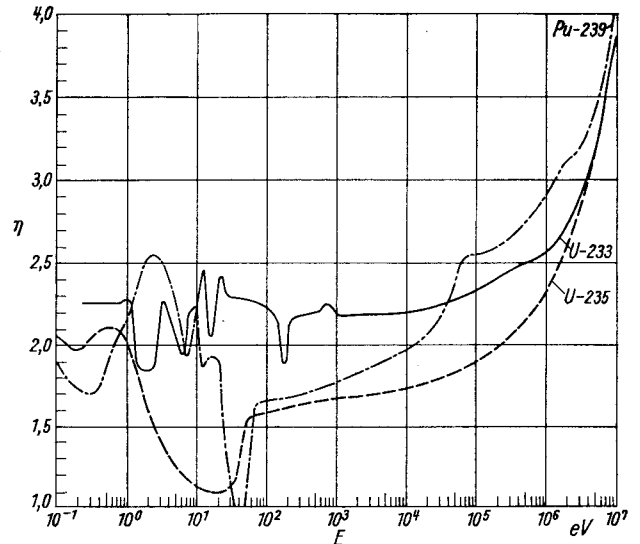


Abb. 1:  $\eta$ -Werte für U-233, U-235 und Pu-239 in Abhängigkeit von der Energie.

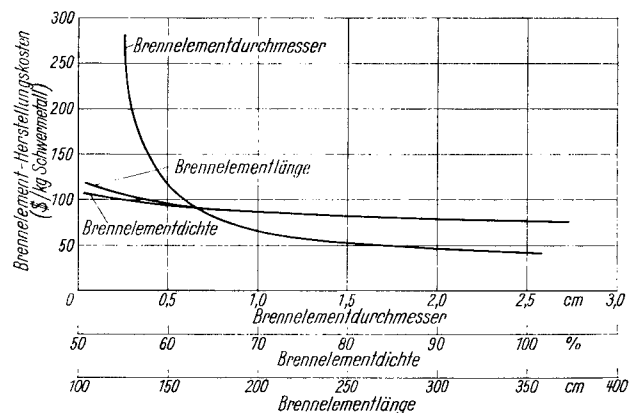


Abb. 2: Die Brennelement-Herstellungskosten in Dollar/kg Schwermetall für verschiedene Brennelementdurchmesser, Brennelementdichten und Brennelementlängen.

Referenzbrennelement:

- Pelletdurchmesser 0,8179 cm
- Brennelementlänge 3,353 m
- Pellettdichte 96,5%
- Cladding Zircaloy-4
- Anlagenkapazität 1000 kg Schwermetall pro Tag
- Amortisationsrate 22%

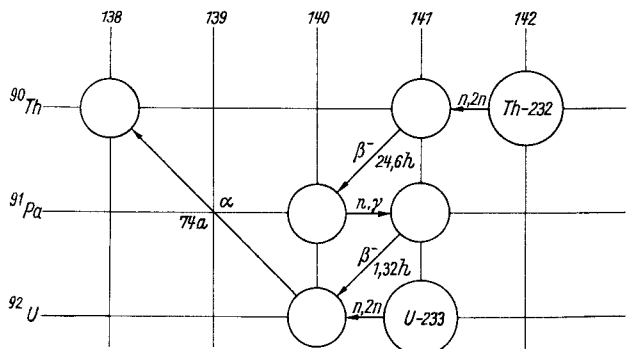


Abb. 3: Der Aufbau von U-233 und Th-232.

Tabelle 3: Wiederaufarbeitungskosten als Funktion der Anzahl der Reaktoren eines Typs

	PWR-U	HWR-U	SGR-U	SSCR-Th	HWR-Th	HTGR-Th
Abbrand (MWd/kg) . .	21,0	11,1	22,0	28,2	27,8	58,0
Thermischer Wirkungsgrad (%) .	31,1	26,8	43,6	31,2	26,1	44,4
Chargengröße (t) . . .	33,9	19,5	12,2	66,3	13,5	7,89
1000-MW <sub>el</sub> -Reaktoren Anzahl	Wiederaufarbeitungskosten mills/kW <sub>h<sub>el</sub></sub> bei 15% Zinsbelastung					
5	0,332	0,396	0,321	0,357	0,381	0,306
10	0,201	0,237	0,195	0,212	0,232	0,184
15	0,154	0,177	0,144	0,159	0,173	0,135 <sup>1)</sup>
20	0,125	0,136	0,104	0,116	0,125	0,099

<sup>1)</sup> Minimalkosten abhängig vom Brennstofftyp.

Tabelle 4: Kostenanteile für Wiederaufarbeitung und Refabrikation in mills/kW<sub>h<sub>el</sub></sub>

	PWR	SSCR	HWR	HTGR	SBR	MSBR
Refabrikation . . . . .	0,42	0,28	0,27	0,43	0,69	0,14 <sup>1)</sup>
Wiederaufarbeitung . . . .	0,19	0,19	0,23	0,16	0,24	0,12
Transport . . . . .	0,03	0,04	0,04	0,05	0,05	—
	0,64	0,51	0,54	0,64	0,98	0,26
Gesamt-Brennstoffkreislaufkosten . . . . .	1,6	1,83	1,37	1,34 <sup>2)</sup>	2,05	0,35
Anteil von Fabrikation und Wiederaufarbeitung an den Gesamt-Brennstoffkreislaufkosten . . . . .	40%	28%	39%	48%	48%	74%

<sup>1)</sup> Kosten für die Trägersalze einschließlich Li<sup>7</sup>.

<sup>2)</sup> In einer neueren Arbeit von R. S. Carlsmith et al. „Fuel-Cycle Cost Comparison for High-Temperature Gas-Cooled Reactor Fuels“ (ORNL-TM-1112, April 1965) werden für einen Hochtemperaturreaktor mit U-Th-Brennstoff für Refabrikation 0,205, Wiederaufarbeitung 0,177 und Transport 0,023 mills/kW<sub>h<sub>el</sub></sub> angegeben. Carlsmith berechnet die Brennstoffkreislaufkosten zu 0,880 mills/kW<sub>h<sub>el</sub></sub>.

Tabelle 5: Anteil der Refabrikations- und Wiederaufarbeitungskosten an den Gesamtkosten

	PWR	SSCR	HWR	HTGR	SBR	MSBR
Gesamtkosten (mills/kW <sub>h<sub>el</sub></sub> )	4,0	4,2	4,4	3,5	4,4	2,9
Anteil (%) . . . . .	16,0	12,0	12,5	18,3	22,3	9,0

Tabelle 6: Euratom-Prognosen für die Entwicklung des Einsatzes der Kernenergie zur Stromerzeugung im Euratombereich

Jahr	Installierte Gesamtnuklearleistung am 1. Januar 1000 MW <sub>el</sub>	Lastfaktor h/a	Jährliche Produktion 10 <sup>6</sup> kWh
1970	3,7	—	22
1975	12,2	6000	72
1980	40,0	—	240
1990	140,0	5500	770
2000	370,0	5500	1850

Tabelle 7: Verteilung der erwarteten installierten Kapazität auf die Reaktorreihen in MW<sub>el</sub>

	Gas-Graphit	Wasser	Fortgeschrittene Konverter	Schnelle Brüter	Gesamt
1970	2 000	1 500	200	—	3 700
1974	5 500	5 000	1 500	—	12 000
1979	17 000	17 000	5 000	1 000	40 000
1984	25 000	25 000	19 000	6 000	75 000
1989	35 000	35 000	51 000	19 000	140 000
1994	35 000	35 000	98 000	60 000	228 000
1999	35 000	35 000	115 000	185 000	370 000

die in der Größenordnung von 0,03 bis 0,05 mills/kW<sub>h<sub>el</sub></sub> liegen. Wesentlich gehen jedoch in die Gesamtkosten nicht so sehr die reinen Transportkosten ein, sondern vielmehr die Kosten für den Mehrbedarf an Brennstoff; denn der Brennstoff, der dem Reaktor für die Refabrikation entnommen wird, muß durch neuen Brennstoff ersetzt werden.

### 3. Wiederaufarbeitung

Im Vergleich zur Wiederaufarbeitung von Uranbrennstoff wird die Wiederaufarbeitung von Th-U-Brennstoff durch zwei Besonderheiten erschwert:

a) der langsame Zerfall von Pa-233 in U-233 (Halbwertszeit 27,4 Tage),

b) Gammaaktivität der Folgeprodukte von U-232 und Th-228.

Roberts et al. [4] verglichen die Wiederaufarbeitungskosten für verschiedene Reaktortypen. In Tab. 3 sind für verschiedene Reaktortypen mit vorgegebenem Abbrand für verschiedene Größen einer Eintypen-Nuklearwirtschaft die Brennstoffkreislaufkosten-Anteile angegeben. Diese Kostenangaben basieren auf einer Zinsbelastung von 15%, die mit den Angaben über die erste private Wiederaufarbeitungsanlage, *Nuclear Fuel Service (NFS)*, übereinstimmt. In der chemischen Industrie liegen allerdings die Belastungen im Durchschnitt in den USA bei ca. 22%. Würde man diese Angaben zugrunde legen, erhöhten sich diese Kosten.

Man sieht aus der Tabelle, daß es sich kaum lohnen wird, für einen 1000-MW<sub>el</sub>-Reaktor eines dieser Typen eine einzige Aufarbeitungsanlage zu bauen. Die Wiederaufarbeitungskosten würden dann zu hoch liegen.

Für einen Hochtemperaturreaktor, wie ihn die *General Atomic* vertritt (HTGR), einen Schwerwasserreaktor (HWR, Savannah River), einen Spectral Shift Control Reactor (SSCR), basierend auf Konstruktionen von *Babcock & Wilcox*, einen Seed-Blanket Reactor (SBR), vorgeschlagen von *Bettis Atomic Power Laboratory*, und einen thermischen Salzschnmelzenbrüter MSBR, vorgeschlagen vom ORNL, wurden von *Rosenthal et al.* [3] bei einer Belastung von 22% für die Wiederaufarbeitungs- und Refabrikationsanlagen und einer zu versorgenden Nuklearindustrie jeweils eines Typs von 15 000 MW<sub>el</sub> die Kostenanteile bestimmt. Sie sind in Tab. 4 aufgeführt.

Aus diesen Ausführungen sieht man, daß die mit der Wiederaufarbeitung und Refabrikation verbundenen Kosten einen beträchtlichen Anteil der gesamten Brennstoffkreislaufkosten ausmachen. Dieser Anteil steigt noch weiter, wenn man nicht 15 000 MW<sub>el</sub> zugrunde legt, sondern nur 5000 MW<sub>el</sub>.

Obwohl die Kosten für den Brennstoffkreislauf nur einen Teil der Gesamtstromkosten ausmachen, werden auch die Gesamtkosten durch die Kosten für Wiederaufarbeitung und Refabrikation erheblich beeinflusst (Tab. 5).

Für eine 1000-MW<sub>el</sub>-Anlage eines dieser Typen wird eine integrierte Wiederaufarbeitungs- und Refabrikationsanlage, die gewisse Vorteile zwar brächte (Ersparnis von Abschirmungen, zusätzlichem Personal und Räumen), wahrscheinlich keineswegs diese Kosten beträchtlich senken können. Genaue Zahlenwerte sind hierfür allerdings nicht vorhanden.

Die bisher gezeigten Zahlen machen deutlich, daß Wiederaufarbeitung und Refabrikation nur dann wirtschaftlich sind, wenn möglichst zur selben Zeit eine bereits eingebaute Nuklearindustrie des betreffenden Typs von 15 000 MW<sub>el</sub> installiert ist.

Langfristige Voraussagen von Euratom [5] geben die in den Tabellen 6 und 7 angegebenen Zahlen für die Euratom-Länder an. Sie machen deutlich, daß für den Euratom-Bereich erst im Jahre 1983 mit 15 000 MW<sub>el</sub> installierter Leistung an fortgeschrittenen Konvertern zu rechnen ist. Etwa vier Jahre später sind erst 15 000 MW<sub>el</sub> an schnellen Brütern installiert.

Die Erzielung hoher spezifischer Leistungen und kurzer Verdopplungszeiten ist die eine Forderung an Reaktoren,

um mit den billigen Uranreserven auszukommen. Die andere Forderung allerdings ist die Erzeugung von Elektrizität zu konkurrenzfähigen Preisen, d. h. die Forderung nach der Wirtschaftlichkeit. Selbst unter optimalen Annahmen lagen die Kostenanteile für Wiederaufarbeitung und Refabrikation im Bereich von 0,5 bis 1 mills/kWh<sub>el</sub>. Diese Kosten kann man senken, wenn man zu den sog. Fließbrennstoffen übergeht. Zu dieser Form von Brennstoffen gehören Suspensionen, Salzschnmelzen, Pasten und Metallschnmelzen, in gewisser Hinsicht auch Kugelbrennelemente.

Der Vorteil der Fließbrennstoffe liegt darin, daß eine Brennstoffherstellung wie bei Festbrennstoffen nicht benötigt wird. Zwar sind i. a. noch chemische Prozesse notwendig, um den aus der Wiederaufarbeitungsanlage kommenden Spaltstoff in den Brennstoff umzuwandeln (Herstellung der Pasten, Metallschnmelzen etc.), doch es entfällt der gesamte „mechanische“ Teil der Refabrikation.

Wenn die Aufarbeitung des bestrahlten Brennstoffs am Orte selbst durchgeführt werden kann, entfallen auch die Transportkosten. Somit entfallen zwei wichtige Kostenfaktoren. Es bleibt allerdings das Problem der Wiederaufarbeitung, die einfach, billig, schnell und möglichst kontinuierlich durchgeführt werden soll. Hier zeichnen sich besonders die Salzschnmelzenreaktoren aus, die ein besonders einfaches Wiederaufarbeitungsschema besitzen.

#### 4. Schluß

Die Wiedereinspeisung erbrüteten Brennstoffs in Leistungsreaktoren wirft eine Reihe neuer Probleme auf. Am Beispiel von Thoriumreaktoren wurde gezeigt, daß die Wirtschaftlichkeit dieser Systeme in sehr hohem Maße von billiger und schneller Wiederaufarbeitung und Refabrikation abhängt. Hohe Brutraten und spezifische Leistungen können nur dann sinnvoll ausgenutzt werden, wenn der erbrütete Brennstoff schnell und billig rückgewonnen und verarbeitet werden kann.

DK 621.039.544.35:621.039.566.6.003

#### Literatur

- [1] U. Ohlig: ~~Mang~~gruppen-Wirkungsquerschnitte von U-233, interner Bericht IRG-65-19 (Juli 1965).
- [2] A. L. Lotts, D. A. Douglas, Jr.: Refabrication Technology for the Thorium-Uranium-233 Fuel Cycle, ORNL-TM-1141 (1965).
- [3] M. W. Rosenthal et al.: The Technical and Economic Characteristics of Thorium Reactors, ORNL-TM-1145 (Juni 1965); A Comparative Evaluation of Advanced Converters, ORNL-3686 (Jan. 1965).
- [4] J. T. Roberts et al.: Reprocessing Methods and Costs for Selected Thorium-Bearing Reactor Fuel Types, ORNL-TM-1139 (Mai 1965).
- [5] EURATOM-Long-term Forecasts, Nucl. Eng., April 1965.